

4965-100080
EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2001199733
PUBLICATION DATE : 24-07-01

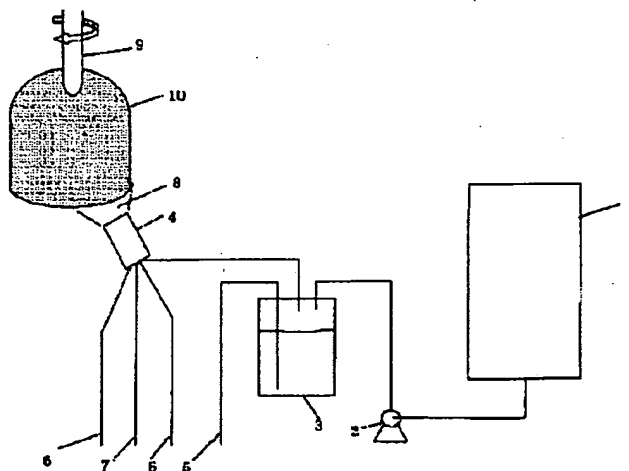
APPLICATION DATE : 12-01-00
APPLICATION NUMBER : 2000003194

APPLICANT : SHIN ETSU CHEM CO LTD;

INVENTOR : SHIROTA KAZUO;

INT.CL. : C03B 19/14 C03B 8/04 C03B 19/00
C03B 20/00

TITLE : METHOD FOR PRODUCING
SYNTHETIC QUARTZ GLASS MEMBER



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a synthetic quartz glass member of fixed shape by a short process without damage by carelessness of handling, formed by a process for transparently vitrifying a porous silica sintered compact and carrying out a process for eliminating foams by one process.

SOLUTION: In this method for producing the synthetic quartz glass member in which a silane compound is subjected to a flame hydrolysis by a multiple pipe burner, formed synthetic silica fine particles are adhered and deposited on a starting substrate which is rotated, the porous silica sintered compact is formed while being taken-off axially, then the sintered compact is heated, transparently vitrified and molded into a fixed shape, the method for producing the synthetic quartz glass member is characterized in that the porous silica sintered compact is placed on a mold material of fixed size having an open top part and heated at 1,750 to 1,800°C so that the porous silica sintered compact is transparently vitrified, naturally penetrated into the mold material to give the synthetic quartz glass member of fixed shape corresponding to the mold material.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-199733

(P2001-199733A)

(43) 公開日 平成13年7月24日 (2001.7.24)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード* (参考)
C 0 3 B	19/14	C 0 3 B 19/14	Z 4 G 0 1 4
	8/04	8/04	L
	19/00	19/00	Z
	20/00	20/00	Z

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願2000-3194(P2000-3194)

(22) 出願日 平成12年1月12日 (2000.1.12)

(71) 出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72) 発明者 高野 伸一

新潟県中頸城郡頸城村大字西福島28-1

信越化学工業株式会社精密機能材料研究所
内

(72) 発明者 大塚 久利

新潟県中頸城郡頸城村大字西福島28-1

信越化学工業株式会社精密機能材料研究所
内

(74) 代理人 100079304

弁理士 小島 隆司 (外1名)

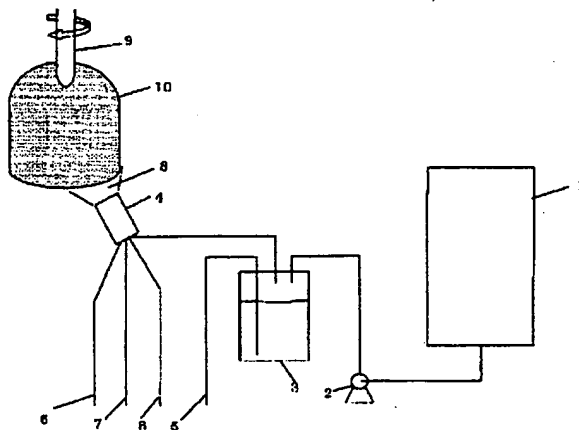
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 合成石英ガラス部材の製造方法

(57) 【要約】

【解決手段】 多重管バーナーによってシラン化合物を火炎加水分解して、生成した合成シリカ微粒子を回転している出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体を形成し、次いでこれを加熱し透明ガラス化後、所望形状に成型して合成石英ガラス部材を製造する方法において、上記多孔質シリカ焼結体を上端部が開口する所望サイズの型材上に載置し、1750～1800℃の温度に加熱することにより、上記多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化すると共に、上記型材内に自然侵入させて、この型材に応じた所望形状の合成石英ガラス部材を得ることを特徴とする合成石英ガラス部材の製造方法。

【効果】 本発明によれば、多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化する工程から成型すると共に、気泡を消去する工程を1工程で行うことにより、所望形状の合成石英ガラス部材を短い工程でかつ取り扱いの不注意による破損もなく得ることができる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 多重管バーナーによってシラン化合物を火炎加水分解して、生成した合成シリカ微粒子を回転している出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体を形成し、次いでこれを加熱し透明ガラス化後、所望形状に成型して合成石英ガラス部材を製造する方法において、上記多孔質シリカ焼結体を上端部が開く所望サイズの型材上に載置し、1750～1800℃の温度に加熱することにより、上記多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化すると共に、上記型材内に自然侵入させて、この型材に応じた所望形状の合成石英ガラス部材を得ることを特徴とする合成石英ガラス部材の製造方法。

【請求項2】 上記多孔質シリカ焼結体の嵩密度が0.45～0.80 g/cm³である請求項1記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、合成石英ガラス部材の製造方法、特に多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化し、所望の大きさに成型する工程を有する合成石英ガラス部材の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 合成石英ガラス部材の製造が、四塩化珪素などの珪素化合物を必要に応じて添加されるドーパントとしての四塩化ゲルマニウムなどと共に多重管バーナーからの酸水素火炎中で火炎加水分解し、ここで発生したシリカ微粒子を出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体とし、これを加熱透明化し、次いでこれを再度加熱延伸して所望の形状にするという方法で行われることはよく知られているところであり、これは一般に光ファイバプリフォームの製造方法として知られているものである。また、大口径、高嵩密度を有する多孔質シリカ焼結体を加熱透明化した後、冷却し、これを所望サイズの型材に収納し、再度これを加熱溶解して得た高温での耐熱性を有する間接法による合成石英ガラス部材は、例えば電子材料用合成石英マスク基板、液晶分野におけるp-Si TFT用基板としても使用されている。

【0003】そして、これらの用途では、合成石英ガラスインゴットのサイズが200mmφ以上の大口径のものも必要とされることから、このような大口径の合成石英ガラスインゴットの製造方法としては

(1) 大口径(例えば350mmφ程度)、高嵩密度の多孔質シリカ焼結体を形成する方法、(2) 多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化した後、成型拡大する方法などが行われている。

【0004】しかし、(1)の方法でサイズが200mmφ以上の大口径の合成石英ガラスインゴットを製造するには、従来使用していたバーナーでは原料炎が拡がり

難いために、所望のサイズを得ることは非常に困難であり、たとえ所望のサイズを得たとしても、多孔質シリカ焼結体の嵩密度が低ければ収縮率が大きくなってしまい、所望のサイズの合成石英ガラスインゴットが得られないことになるという欠点がある。

【0005】例えば、多孔質シリカ焼結体の外径が350mmφで、嵩密度が0.4 g/cm³であれば、透明ガラス化後の外径は195mmφとなるため、外径が200mmφ以上の合成石英ガラスインゴットを製造するためには、多孔質シリカ焼結体の外径を350mmφとしたとき、嵩密度が0.6 g/cm³以上でなければならぬ。また、多孔質シリカ焼結体の嵩密度が0.4 g/cm³である場合、その外径は395mmφ以上でなければ200mmφ以上の合成石英ガラスインゴットを製造することはできない。

【0006】また、(2)の方法については、一旦透明ガラス化した後、室温まで冷却し、所望サイズの型材に収納し、再度加熱し、合成石英ガラスインゴットを溶解することで、所望サイズにすると共に、気泡を消去するという3工程が必要とされるため工程が長く、また重量物であるため各工程での取り扱いに注意が必要とされ、繰り返しの加熱が必要とされるためにそのエネルギーの消費も多いという欠点がある。

【0007】その改善方法として、特開平5-270848号公報のように多孔質シリカ焼結体を溶解炉内に吊り下げた状態で透明ガラス化し、次いでこれを1750～1850℃で加熱してガラス粘度が低下して伸びてきたところを炉内下部に設置してある型材で受け、そのまま型材形状に成型する方法も提案されているが、これは多孔質シリカ焼結体と型材との間に隙間を設ける必要があり、その分、多孔質シリカ焼結体の長さを短いものにする必要があるため、生産性を下げる原因の一つになっていた。

【0008】本発明は、このような不利、問題点を解決するためになされたもので、所望形状の合成石英ガラス部材を短い工程で簡単に効率よく製造することができる合成石英ガラス部材の製造方法を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】 本発明者らは所望するサイズの合成石英ガラス部材の効率的な製造方法を開発すべく種々検討した結果、多重管バーナーによってシラン化合物を火炎加水分解して生成した合成シリカ微粒子を回転している出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体を形成した後、該多孔質シリカ焼結体を上端部が開く所望サイズの型材上に載置させ、真空下、不活性ガスなどの減圧下又は大気圧下にて1750～1800℃の高温で加熱し、上記多孔質シリカ焼結体を上記型材内に自然侵入させることにより、該多孔質シリカ焼結体が透

明ガラス化され、所望の大きさになると共に、気泡が消去されるということを見出した。該多孔質シリカ焼結体を所望サイズの型材上に載置することについては、多孔質シリカ焼結体の嵩密度を高くすることにより、多孔質シリカ焼結体を型材の上に載置しても崩壊することはないこと、また上記多孔質シリカ焼結体の加熱については、1750℃より低温では泡の存在が完全には解消されない場合があり、1800℃より高温では合成石英ガラス自体が昇華するか、もしくは合成石英ガラスの粘度が低下して出発基材が成型した合成石英ガラスの中に沈んでしまう場合があり、出発基材を取り除くために成型した合成石英ガラス部材の一部を除去するので歩留まりが低下するばかりでなく、時間をも費やすので、この加熱は1750～1800℃の範囲とすることが必要である。

【0010】また、多孔質シリカ焼結体は所望サイズの型材上に載置し、加熱することにより、多孔質シリカ焼結体の体積が縮小されるため、所望サイズの型材より外径が太い多孔質シリカ焼結体でも、所望サイズの型材と同一なサイズになると共に、型材内に挿入され、透明ガラス化し、その透明ガラス化した温度以上においてガラスの粘度が低下するので適当な時間が経過すると所望サイズの型材の形状に合致するため、最初から所望サイズの型材の中に入れておく必要がなく、製造可能であることを確認し、本発明をなすに至った。

【0011】従って、本発明は、多重管バーナーによってシラン化合物を火炎加水分解して、生成した合成シリカ微粒子を回転している出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体を形成し、次いでこれを加熱し透明ガラス化後、所望形状に成型して合成石英ガラス部材を製造する方法において、上記多孔質シリカ焼結体を上端部が開口する所望サイズの型材上に載置し、1750～1800℃の温度に加熱することにより、上記多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化すると共に、上記型材内に自然侵入させて、この型材に応じた所望形状の合成石英ガラス部材を得ることを特徴とする合成石英ガラス部材の製造方法を提供する。

【0012】以下、本発明につき更に詳しく説明する。本発明の合成石英ガラス部材の製造方法は、多重管バーナーによってシラン化合物を火炎加水分解して生成した合成シリカ微粒子を回転している出発基材上に付着、堆積させ、軸方向に引き取りながら多孔質シリカ焼結体を形成する。

【0013】図1は本発明で使用する公知の多孔質シリカ焼結体製造装置の縦断面図を示したものであるが、これは原料としてシラン化合物を原料ストックタンク1に収納し、これを原料送液ポンプ2で原料蒸発器3に送り、ここにキャリアガス5としてのアルゴンガス、窒素ガス等の不活性ガスを送ってこれを酸水素火炎バーナー4に供給すると共に、このバーナー4に酸素ガス6、水

素ガス7を供給し、上記シラン化合物を酸水素火炎8中で燃焼、火炎加水分解させ、これによって生成したシリカ微粒子をカーボン、SiC、石英ガラスなどの耐熱性の出発基材9に堆積、成長させて、ここに多孔質シリカ焼結体10を製造する。

【0014】この場合、シラン化合物としては四塩化硅素などの不燃性又は燃焼熱量の低い原料を使用すると、原料の拡散が悪く、燃焼熱も低いために、嵩密度を0.45g/cm³以上上げることは難しく、嵩密度が低いために透明ガラス化後のインゴットの収縮率の大きいものとなり、大口径のものを得ることが難しいので、ここで使用するシラン化合物は、化学式R¹_nSi(O-R²)_{4-n}（但し、R¹は水素原子、メチル基又はエチル基、R²はメチル基又はエチル基、n=0～4の正数）で示されるアルコキシシランとすることが好ましく、これによれば嵩密度が0.45～0.80g/cm³の多孔質シリカ焼結体を得ることができる。

【0015】このようにして作られた多孔質シリカ焼結体は、加熱し、透明ガラス化した後、所望の形状になるように成型し、合成石英ガラス部材とされるものであるが、本発明においては、上記多孔質シリカ焼結体を上端面が開口する所望サイズの型材上に載置し、真空下、不活性ガスなどの減圧下又は大気圧下で1750～1800℃の高温で加熱することにより、該多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化すると共に、上記型材内に自然侵入させ、所望の大きさにするものであるが、これによればガラス化から成型まで1工程で所望形状の合成石英ガラス部材を得ることができる。

【0016】即ち、図2は、上記方法を説明するもので、図中11は真空溶解炉であり、この内部に基台12上に均熱管13が配置されると共に、この均熱管13を取り囲んでカーボンヒーター14が配設されている。そして、上記均熱管13内に上端部が開口したガラス化成型用型材15が配置され、この型材15上にその上端開口部を覆った状態で上記で得られた多孔質シリカ焼結体10が載置され、上記カーボンヒーター14を有する真空溶解炉11中で真空下、減圧下又は大気圧下に1750～1800℃に加熱されて所望の形状に成型されると共に、気泡を消去して合成石英ガラス部材とされる。なお、炉体内は温度分布を有し、下部から上部にかけて温度が低下する勾配を有することが好ましい。

【0017】この場合、ガラス化成型用型材15の中心軸と多孔質シリカ焼結体10の中心軸が大きく外れると、多孔質シリカ焼結体10はガラス化成型用型材15に入らず、ガラス化成型用型材15から外れるため、成型されずにガラス化することになる。

【0018】従って、この多孔質シリカ焼結体10をガラス化成型用型材15でガラス化成型するためには、多孔質シリカ焼結体10をガラス化成型用型材15にセットする際に、多孔質シリカ焼結体10の中心軸をガラス

化成型用型材15の中心軸から大きく外れないようにセットすることが好ましい。

【0019】また、この多孔質シリカ焼結体を真空溶解炉中で真空下、減圧下又は大気圧下に1750～1800℃に加熱したとしても、この時の加熱温度の保持時間が短ければ、合成石英ガラス部材は所望の形状に成型されず、多孔質シリカ焼結体の形状を取縮した形状の合成石英ガラス部材となるおそれがあるが、この多孔質シリカ焼結体を所望の形状の合成石英ガラス部材にするためには、多孔質シリカ焼結体がカーボンヒーターを有する真空溶解炉中で真空下、減圧下又は大気圧下に1750～1800℃に加熱されるときに加熱温度の保持時間は、合成石英ガラス部材が型材と合致するのに十分な範囲時間、好ましくは0.3～1時間とすることが必要とされる。即ち、多孔質シリカ焼結体の加熱時間については、0.3時間より短い場合、型材との合致が充分でなく、1時間を超えると型材との接触面から数十ppbの金属不純物が型材との接触面周辺に混入し、中心方向に拡散するという問題が生ずるおそれがあるので、多孔質シリカ焼結体の加熱時間は0.3～1時間が好ましい。

【0020】而して、多孔質シリカ焼結体の中心軸をガラス化成型用型材の中心軸から大きく外れないようにセットし、1750～1800℃で加熱し、好ましくは加熱時間を0.3～1時間とすることによって、多孔質シリカ焼結体が型材内に自然侵入し、所望形状の合成石英ガラス部材を短い工程で得ることができるものである。

【0021】本発明の合成石英ガラス部材の製造方法は、特には電子材料用合成石英マスク基板、液晶分野におけるp-Si TFT用基板などに使用される大口径(150mmφ以上)の石英インゴットの製造に好適である。

【0022】

【実施例】以下、実施例と比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。

【0023】〔実施例〕テトラメトキシシランを原料とし、これを図1に示した方法で酸水素炎で火炎加水分解し、生成したシリカ微粒子をカーボン製担体(出発基材)上に堆積させ、サイズが300mmφ×350mmLで、嵩密度が0.60g/cm³である多孔質シリカ焼結体を作製し、これを図2に示したように、真空溶解炉中の内径220mmφ×500mmLのガラス化成型用型材上にセットし、10Pa以下で、昇温速度10℃/分で1200℃まで昇温し、10時間保持後、更に1℃/分で1750℃で1時間加熱したところ、上記多孔質シリカ焼結体が上記型材内に自然侵入し、サイズが220mmφ×177mmLの合成石英ガラス部材が得られた。

【0024】〔比較例〕テトラメトキシシランを原料とし、これを図1に示した方法で酸水素炎で火炎加水分解

し、生成したシリカ微粒子をカーボン製担体上に堆積させ、サイズが300mmφ×350mmLで嵩密度が0.60g/cm³である多孔質シリカ焼結体を作製し、これを図3に示した真空溶解炉中にセットした。ここで、図3において、16はカーボン製治具であり、多孔質シリカ焼結体10はこの治具16に吊下される。次いで、10Pa以下で、昇温速度10℃/分で1200℃まで昇温し、10時間保持後、更に1℃/分で昇温し1400℃で2時間加熱した。8時間かけて室温まで冷却し、真空溶解炉より取り出し、合成石英ガラスインゴットを得た。カーボン製担体部分を取り除いてから、図4に示した内径220mmφ×500mmLの型材17の中に上記インゴット18を入れ、溶解炉19中の基台20上にセットし、カーボンヒーター21により20℃/分で昇温し、1750℃で1時間加熱したところ、サイズが220mmφ×177mmLの合成石英ガラス部材が得られた。

【0025】

【発明の効果】本発明によれば、多孔質シリカ焼結体を透明ガラス化する工程から成型すると共に、気泡を消去する工程を1工程で行うことにより、所望形状の合成石英ガラス部材を短い工程でかつ取り扱いの不注意による破損もなく得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】シラン化合物の火炎加水分解で多孔質シリカ焼結体を製造する装置の縦断面図である。

【図2】本発明に係る合成石英ガラス部材を1750～1800℃に加熱処理する装置の縦断面図である。

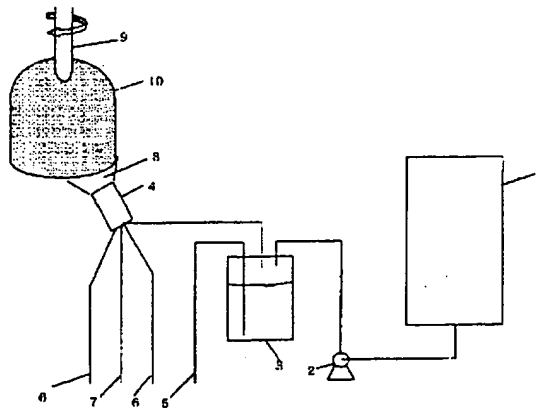
【図3】公知の方法により多孔質シリカ焼結体を加熱し、透明ガラス化して合成石英ガラス部材を製造する装置の縦断面図である。

【図4】公知の方法により合成石英ガラス部材を加熱し、成型して所望の形状の合成石英ガラス部材を製造する装置の縦断面図である。

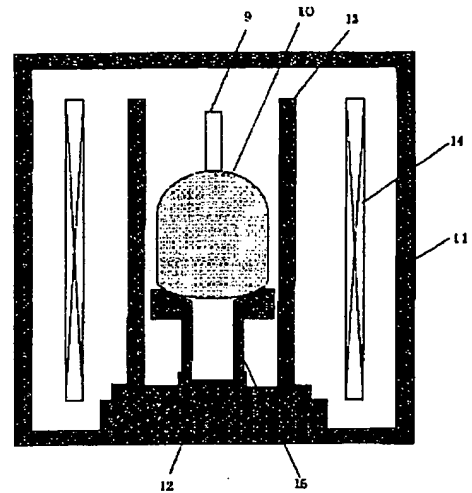
【符号の説明】

- 1 原料ストックタンク
- 2 原料送液ポンプ
- 3 原料蒸発器
- 4 酸水素火炎バーナー
- 5 キャリアガスライン
- 6 酸素ガスライン
- 7 水素ガスライン
- 8 酸水素火炎
- 9 出発基材
- 10 多孔質シリカ焼結体
- 11 真空溶解炉
- 12 基台
- 13 均熱管
- 14 カーボンヒーター
- 15 ガラス化成型用型材

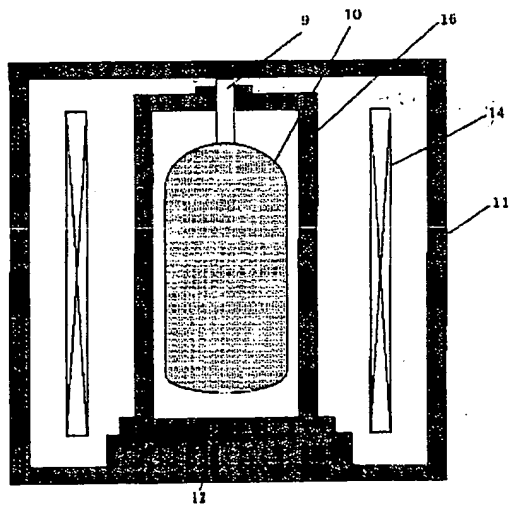
【図1】



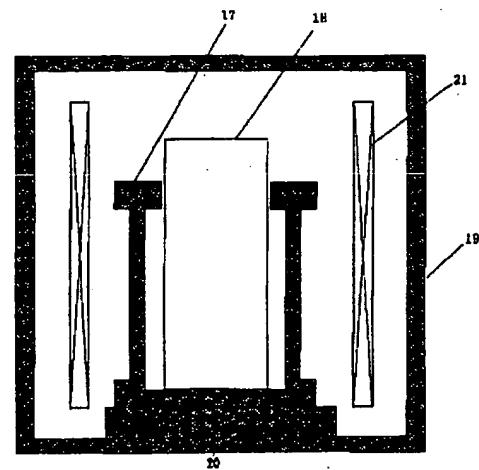
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72) 発明者 代田 和雄
新潟県中頸城郡頸城村大字西福島28 1
信越化学工業株式会社精密機能材料研究所
内

ドターム(参考) 4G014 AH21

BEST AVAILABLE COPY

THIS PAGE BLANK (USPTO)